

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) DEUTSCHE DEMOKRATISCHE REPUBLIK

PATENTSCHRIFT



Wirtschaftspatent

ISSN 0433-6461

(11) 0153 867

erfindungsgemäß § 5 Absatz 1 des Änderungsgesetzes
zum Patentgesetz

Int.Cl.³

3(51) C 07 C 51/58
C 07 C 53/38

AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung voröffentlich

0153 867

(22) 05.11.80

(44) 10.02.82

LEUNA WERKE "WALTER ULBRICHT" DD;
HANS-HERST, DIPL.-CHEM.; DUODE, URSULA; GUENTHER, HEINZ; HAASE, BERND, DIPL.-ING.; DD,
HANS-HERST, DIPL.-CHEM.; SASS, REGINA; SCHOLZ, JOACHIM; WINTER, HARALD, DIPL.-CHEM.; C
LEUNA WERKE "WALTER ULBRICHT", FOIP, 4220 LEUNA 3

54 VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON CARBONSAEURECHLORIDEN

54 Verfahren zur Herstellung von Carbonsäurechloriden mit verbesserter Reinheit. Nach bekannten Verfahren fallen bei der Umsetzung von Carbonsäuren mit geeigneten Chlorierungsmitteln, z.B. Phosphortrichlorid, Carbonsäurechloride an. Nebenprodukt ist die Bildung von Carbonsäureanhydrid ab. Die anfallenden Produkte enthalten neben Carbonsäureanhydrid auch nichtumgesetzte Carbonsäure. Diese und die bei der Weiterverarbeitung aus dem Anhydrid sich bildende Säure verschlechtern meist die Qualität der Finalprodukte. Durch das erfindungsgemäße zweistufige Verfahren wird es möglich, den Gehalt an Carbonsäureanhydriden und nichtumgesetzten Säuren zu minimieren und praktisch reine Carbonsäurechloride herzustellen. In der ersten Stufe wird bei üblichen Temperaturen gearbeitet und nach Abtrennen des Nebenprodukts enthaltenden Phase bei höheren Temperaturen die weitgehende Umwandlung der Nebenprodukte in Carbonsäurechloride bewirkt. Langkettige Fettsäurechloride werden in großem Umfang zu waschaktiven Alkyldarben und anderen Tensiden verarbeitet. Sie werden weiterhin u.a. zur Herstellung von Carbonsäureamiden und als Zwischenprodukt in der Photoindustrie gebraucht. Weitere Carbonsäurechloride, z.B. Acetylchlorid und Benzolchlorid, sind ebenfalls wichtige Zwischenprodukte.

VEB Leuna-Werke
Walter Ulbricht

Leuna, 30.10.1980

LP 8057

Titel der Erfindung

Verfahren zur Herstellung von Carbonsaeurechloriden

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Einsatzgebiete fuer Carbonsaeurechlorid sind sehr vielseitig. So werden die laengerkettigen, aliphatischen Saeurechloride, z.B. das aus Olein erhaeltliche Fettsaeurechloridgemisch, in grossem Umfang zu waschaktiven Acyltauriden und anderen Tensiden verarbeitet. Sie werden weiterh n zur Herstellung von Carbonsaeureamiden und als Zwischenprodukt in der Photoindustrie gebraucht. Acetylchlorid, das Chlorid der Essigsaeure, dient als vielseitig einsetzbares Zwischenprodukt und wird u.a. zur Herstellung von Carbonsaeureanhydriden und als Chlorierungsmittel fuer anorganische Verbindungen benoetigt. Ein weiteres Beispiel fuer ein haeufig verwendetes Carbonsaeurechlorid ist das Benzoylchlorid, das zur Einfuehrung der Benzoylgruppe in Phenole, Alkohole und Amine dient.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Es ist bekannt, Carbonsäuren mit einer Vielzahl von Chlorierungsmitteln, wie z.B. PCl_3 , PCl_5 , SOCl_2 , COCl_2 , zu Carbonsäurechloriden umzusetzen. Die Anwendung von PCl_3 ist dabei am ökonomischsten, da nach der Reaktionsgleichung



mit 1 Mol Chlorierungsmittel 3 Mol Carbonsäure umgesetzt werden können. In der Technik wird dieser ökonomische Vorteil auch genutzt. So ist es bekannt,

- Ind. Eng. Chem. 42 (1950), S. 1630 (M.L.Kastens, J.J.Ayo)(1)
- DD-PS 33465 (2)
- Tenside, Textilhilfsmittel, Waschrohstoffe Bd. 1 (1964), S. 735 u. 736 (K. Lindner) (3)
- Przemysł Chemiczny 46/6 (1967) (H. Niewiadomsky, W.Zwierzynski) (4),

im technischen Massstab Carbonsäuren mit PCl_3 zu Carbonsäurechloriden umzusetzen. Hierbei wird ein PCl_3 -Überschuss von 20 bis 60 % eingesetzt und bei Temperaturen von 40 bis 80°C in einstufigen Verfahren gearbeitet.

In (1) wird fuer das technische Produkt eine Zusammensetzung von 90 bis 92 % Oelsäurechlorid, 3,5 bis 5,0 % nichtumgesetzter Oelsäure und 2,5 bis 4,2 % PCl_3 angegeben. Aussagen zur Analytik fehlen.

Nach (2) wird in einem technischen Verfahren mit etwa 30 % PCl_3 -Überschuss bei etwa 50°C gearbeitet. Die veröffentlichten Aussagen zur Ausbeute bzw. Produktreinheit basieren auf Messung der anfallenden technischen Produkte Säurechlorid und phosphorige Säure.

In (3) und (4) werden keine Angaben zur Produktausbeute und -reinheit gemacht.

Es ist weiterhin bekannt, nach

- Fettchemische Umschau 42, S. 27-29(1935) (5)
- Oil and Soap, 23, S. 1-5(1946), (S.T.Bauer) (6)
- Jour. Am. Oil Chemist's Soc. 29(1952), S.169-170 (B.M.Craig, W.O. Lundberg, W.F. Geddes)

- Jour. Am. Oil Chemist's Soc. 31 (1954), S.151-157
(N.O.V.Sonntag, J.R.Trowbridge, J.I.Krems) (8)
- Oleagineux 13 (1958), S.749-750 (S.Piekarski) (9)
- "Fatty acids", Interscience Publishers, Inc., New York 1961, Teil 2, S.1127-1138 (K.S. Markley) (10)
- Jour. Am. Oil Chemist's Soc. 41 (1964) S.104-107
(A.R.Galbraith, P. Hale, J.E. Robertson) (11)
- Chim. Prom. 1976/11, S. 821-823
(K.P. Petrishchew, G.V. Zdanova u.a.) (12)

in Laboransätzen Carbonsäuren mit PCl_3 zu Carbonsäurechloriden umzusetzen. Dabei wird ein PCl_3 -Überschuss von 20 bis 54 % angewandt und in ebenfalls einstufigem Verfahren die meist längerkettigen Carbonsäuren bei Temperaturen von 43 bis 71°C umgewandelt.

Bei diesen Laboransätzen wird ebenfalls der Reaktionsverlauf nicht analytisch verfolgt und der Grad der Umsetzung bzw. die Zusammensetzung der Reaktionsprodukte analytisch nicht bestimmt. Die Autoren von (5) geben nur Gewichte der Rohprodukte an und die Arbeiten (6), (7) und (8) beschreiben die Umsetzung von 17 bis 100 Gramm Fettsäure bei Ausbeuten von 37 bis 89 % nach Destillation, wobei die Ausbeuten auch nicht analytisch als Säurechloride belegt sind. (9) arbeitet mit Grammengen in Lösungsmitteln. Die Ausbeute wird ebenfalls ohne Analyse der Reaktionsprodukte Säurechlorid und Säureanhydrid von den Anfallprodukten, besonders der phosphorigen Säure, abgeleitet. (10) gibt eine Übersicht über Reaktionen von Fettsäuren mit u.a. PCl_3 . Auch hier fehlen Angaben zur analytischen Ermittlung des Reaktionsverlaufs und der Ausbeute durch Bestimmung der Reaktionsprodukte Säurechlorid und -anhydrid und der nicht umgesetzten Fettsäuren. Die Autoren von (11) ermitteln die Ausbeute durch Waegen der organischen Phase und (12) geben nach dem Reagieren von Laurinsäure bei 60° C mit 50 % PCl_3 -Überschuss eine Ausbeute von 92 bis 94 % Laurinsäurechlorid an, wobei Hinweis auf die Art der Ausbeutermittlung fehlen.

Es ist zu hoffen, dass nach dem Stand der Technik zutreffende Angaben über die Umwandlung an Carbonsäurechloriden

bzw. die bei den einzelnen Methoden oder Verfahren erreichten Produktzusammensetzungen nicht möglich sind. Wenn überhaupt Zusammensetzungen der Reaktionsprodukte oder Ausbeuten genannt werden wie in (1), (6), (7), (8) und (12), dann sind diese Angaben fehlerhaft, da bisher keine analytischen Methoden bekannt waren, die eine präzise Ermittlung des Gehaltes an Carbonsäurechloriden bzw. der gesamten Zusammensetzung des Reaktionsgemisches ermöglichen. So wird in den Veröffentlichungen auf Grund mangelnder analytischer Methoden die Bildung von Carbonsäureanhydriden bei der Carbonsäurechlorierung ignoriert, bzw. es wird nur theoretisch die Möglichkeit der Carbonsäureanhydridbildung diskutiert. Mit Hilfe einer modernen Analysenmethode nach WP GOI N°216027 zur Bestimmung von langkettigen Fettsäurechloriden neben Fettsäureanhydriden in Verbindung mit einer von W. Zniwierska und P. Kikolski (Zesz. Nauk. Politech. Śląsk., Chem. 1973, 64, 151-155) vorgeschlagenen Methode zur Bestimmung freier Fettsäuren kann die Zusammensetzung von Reaktionsgemischen der Fettsäurechlorierung exakt untersucht werden.

Bei der Untersuchung der nach den im Stand der Technik erwähnten Verfahren bzw. Methoden hergestellten Fettsäurechloridgemische mittels der eben erwähnten Analysenmethode ergibt sich, dass in jedem Falle neben den erwünschten Fettsäurechloriden beträchtliche Mengen an Fettsäureanhydriden und auch Anteile an nichtumgesetzten Fettsäuren enthalten sind. Nach diesen Untersuchungen wurde demnach eindeutig bestätigt, dass Fettsäurechloride und Fettsäuren unter den bisher bekannten Bedingungen der Fettsäurechlorierung in gewissen Umfang zu Fettsäureanhydriden reagieren. Das trifft allgemein auch für die Chlorierung aller Carbonsäuren zu.

Ziel der Erfindung

Ziel der Erfindung ist es, Carbonsäurechloride mit verbesserter Reinheit herzustellen und damit die Voraussetzung zu schaffen, mit diesen Carbonsäurechloriden Finalprodukte mit ebenfalls verbesserter Reinheit zu erzeugen.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Es bestand die Aufgabe, ein Verfahren zur Herstellung von Carbonsaeurechloriden mit verbesserter Reinheit zu entwickeln. Unter verbesserter Reinheit ist zu verstehen, dass die Carbonsaeurechloridgemische nur geringe Gehalte an Carbonsaeureanhydrid und nichtumgesetzte r Carbonsaeure aufweisen.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemaess dadurch geloest, dass man in einer ersten Reaktionsstufe die Carbonsaeure in bekannter Weise mit einem Ueberschuss an Chlorierungsmittel, z.B. Phosphortrichlorid oder Thionylchlorid, in Hoehe von 20 bis > 100 % und bei Temperaturen, die vorzugsweise im Bereich von 313 bis 353 K liegen, umsetzt, die das Nebenprodukt enthaltende Phase abtrennt und in einer zweiten Reaktionsstufe bei erhoehter Temperatur die weitgehende Umsetzung der nach der ersten Reaktionsstufe im Gemisch vorliegenden Carbonsaeureanhydride und nichtumgesetzten Carbonsaeuren zu Carbonsaeurechloriden bewirkt, wobei man die Reaktion im Temperaturbereich von 273 bis 523 K, vorzugsweise bei 323 bis 373 K, und in Gegenwart ausreichender Mengen an Chlorierungsmittel und ggfs. Chlorwasserstoff, deren Konzentration ggfs. nach der ersten Reaktionsstufe erhoeht werden kann, durchfuehrt. In dem Reaktionsgemisch liegen nach Beendigung der Reaktion in der ersten Stufe neben Carbonsaeurechloriden in Abhaengigkeit von den Reaktionsbedingungen auch bestimmte Anteile Carbonsaeureanhydride und nicht umgesetzte Carbonsaeuren vor. Die Zusammensetzung dieser Reaktionsgemische kann mit Hilfe der Analyseumethode nach WP GO1 N/216027 ermittelt werden. Diese Analyseumethode gestattet die Analyse langkettiger Fettsaeurechloridgemische.

Man erreicht bei dieser allgemeinen ueblichen Arbeitsweise mit z.B. 30 % PCl_3 -Ueberschuss einen durchschnittlichen Gehalt von 8,7 Masse-% Oleinanhydrid und von 3,5 Masse-% nichtumgesetzten Olein. Fuer verschiedene Verfahren der Weiterverarbeitung dieser Fettsaeurechloridgemische ist es vorteilhaft, den Gehalt an diesen Nebenprodukten in Form einer Konzentra-

tionsangabe auszudruecken, die der Summe an restlichen Fettsaeuren nach der Weiterverarbeitung des Fettsaeurechloridgemisches entspricht. Bei obigen Gehalten an Oleinanhydrid und nichtumgesetztem Olein entspricht das einem Gehalt von 3,0 Masse-% Olein.

Es wurde gefunden, dass sich die in den in ueblicher Weise hergestellten Fettsaeurechloriden enthaltenen Anteile an Fettsaeureanhydriden und nichtumgesetzten Fettsaeuren in Gegenwart von PCl_3 oder anderen Chlorierungsmitteln und ggf. Chlorwasserstoff unter bestimmten Bedingungen praktisch vollstaendig in Fettsaeurechloride umwandeln lassen.

In einer zweiten Reaktionsstufe erfolgt die Umwandlung der in der ersten Reaktionsstufe nicht umgesetzten Carbonsaeuren und der im Reaktionsgemisch vorliegenden Carbonsaeureanhydride zu Carbonsaeurechloriden.

Das gesamte Verfahren, oder auch Teilstufen, kann bei Unterdruck, bis 2 MPa, vorteilhaft aber bei leichtem Unterdruck bzw. Normaldruck bis 200 KPa in der zweiten Reaktionsstufe durchgefuehrt werden.

Erforderlichenfalls kann nach Beendigung der Reaktion noch enthaltenes Chlorierungsmittel und Chlorwasserstoff durch Normaldruck- bzw. Vakuumdestillation bzw. durch Ausblasen mit trockenem Inertgas entfernt werden.

Es wurde ueberraschenderweise gefunden, dass sich Fettsaeurechloride mit verbesserter Reinheit durch den geringeren Gehalt an Fettsaeure, der zu einem geringeren Gehalt an Fettsaeuren Natrium in Finalprodukten, z.B. Acyltauridpaste, fuehrt, besser und mit geringeren Ruehrerantriebsleistungen kondensieren lassen.

Es ist weiterhin moeglich, die Carbonsaeurechlorid-Phase unter Ruehren bzw., nach Mischen der Reaktionspartner in der ersten Verfahrensstufe, ohne oder nur mit mechanischem Ruehren durchzufuehren.

Beispiel 1:

Beispiel 2:

Beispiel 3:

Beispiel 1: In einem Reaktor wurden stündlich 570 kg technische Olein, 100 kg technische Oelsäure mit der mittleren Molekulargewichte 282, 100 kg K unter Rühren mit einem Ueberdruck von 30 % P.D.L. umgesetzt. Nach Passieren eines zweiten Reaktors und Abtrennen der phosphorigen Säure wurde nachfolgend in einer Trenneinrichtung ertheilt das Oleinchlorid nach einer durchschnittlichen Verweilzeit von 2 Stunden bei 323 K 83,0 Masse-% Oleinchlorid, 7,3 Masse-% Oleinanthhydrid und 3,7 Masse-% Olein. Es wurde ohne Abtrennen in weiteren Reaktor und in die zweite Reaktionsstufe überführt, in der es bei einer mittleren Verweilzeit von 5 Stunden bei 373 K 3 Reaktorbehalter passierte. Das wie nach der ersten Stufe nach WZ 1 81 N/216 927 analysierte Produkt enthielt dann 83,2 Masse-% Oleinchlorid, 1,5 Masse-% Oleinanthhydrid und 1,2 Masse-% Olein. Das entspricht gegenüber der ersten Reaktionsstufe einer Senkung des Fettsäuregehaltes um 1,3 Masse-% Olein und potentiell Oleinanteil aus dem Oleinanthhydrid von 7,5 Masse-% auf 2,0 Masse-%. Bei der chemischen Kondensation dieses Oleinchlorids unter bekannten Bedingungen mit Methyltaurinat entstand ein Acyltaurinat mit einem Masseverhältnis der waschaktiven Substanzen Methyltaurinat und oleinsäurem Natrium von 95 zu 1. Bei der Kondensation trat ein gegenüber der Verarbeitung von nach bekanntem Verfahren hergestellten Oleinchloriden geringerer mittlerer Verbrauch an Natriumhydroxid von 17 Masse-% auf.

Beispiel 2:

Beispiel 2: Beispiel 1 nach der ersten Reaktionsstufe und Trennung aufgetrenntes technisches Oleinchlorid enthielt 83,6 Masse-% Oleinchlorid, 9,8 Masse-% Oleinanthhydrid und 5,4 Masse-% Olein. Das entspricht einem Gesamt-Fettsäuregehalt von 10,5 Masse-%. Nach einer Nachreaktion dieses Produktes in einem Behälter bei 373 K und 30 % Ueberdruck wurde folgende Qualität erreicht:

In einem Rührbehälter wurden 940 g Anteile Essigsäure in 5 Minuten bei 297 K mit äquimolaren Mengen PCl_3 gemischt. Nach Abtrennen der phosphorigen Säure wurde das technische Säurechlorid bei 293 bis 298 K in Behältern einer Nachreaktion unterworfen. Mehrere fraktionierte Destillationen führten zu der Acetylchlorid-Ausbeute und zu der Abnahme der wesentlichen Bestandteile Essigsäure und Essigsäureanhydrid als Umwandlung zugunsten des Säurechlorids in Abhängigkeit von der Zeit:

Zweite Reaktionsstufe

(Stunden)	5	190	560
Masse-% Vorlauf	35	3	5
II Acetylchlorid	37	74	80
II Rückstand	15	10	8
II Verlust	13	8	7

Beispiel 6:

In einem technischen Rührbehälter wurden stündlich 970 Massenteile Olein gemäss Beispiel 1 bei 313 K mit einem Überschuss von 50 % PCl_3 umgesetzt. Nach Passieren von zwei weiteren Rührbehältern und einer durchschnittlichen Verweilzeit von insgesamt 3 Stunden bei 313 K gelangte das Reaktionsgemisch in ein Trenngefäß, in dem sich die phosphorige Säure absetzte. Das technische Säurechlorid mit 86,2 Masse-% Oleinchlorid, 7,3 Masse-% Oleinanhydrid und 3,8 Masse-% Olein wurde in eine zweite Reaktionsstufe überführt, in der es bei einer mittleren Verweilzeit von 5 Stunden bei 368 K drei Rührbehälter passierte. Das Produkt enthält danach 92,7 Masse-% Oleinchlorid, 1,3 Masse-% Oleinanhydrid und 0,5 Masse-% Olein. Das entspricht gegenüber der ersten Reaktionsstufe einer Verbesserung des Fettsäuregehaltes aus richtungsgesetztem Olein plus Oleinanteil aus dem Oleinanhydrid von 7,5 % auf 1,1 Masse-%.

Beispiel 7:

Ein gemäss Beispiel 6 nach der ersten Reaktionsstufe bei Trennung angefallenes technisches Oleinchlorid wurde in einem Behälter 10 Tage bei 293 bis 298 K einer Nachbehandlung unterworfen. Das Produkt enthielt nach dieser Umwandlung 91,3 Masse-% Oleinchlorid, 2,7 Masse-% Oleinanhydrid und 6, Masse-% Olein. Das entspricht einem Gesamt-Fettsäuregehalt von 1,9 Masse-%.

Die Ausgangsqualitaet, die mit der Qualitaet nach 7 Tagen Nachreaktion gemäss Beispiel 2 nahezu identisch ist, wurde durch das groessere PCl_3 - Angebot in etwa gleicher Zeit und gleichen Bedingungen in der zweiten Reaktionsstufe weiter verbessert.

Beispiel 8:

In einem technischen Ruehrbehälter wurden stündlich 570 Masse-teile Olein gemäss Beispiel 1 bei 323 K mit einem Ueberschuss von 100 % PCl_3 umgesetzt. Nach einer weiteren Verarbeitung gemäss Beispiel 1 bei 323 K gelangte ein Säurechlorid mit 88,0 Masse-% Oleinchlorid, 4,7 Masse-% Oleinanhydrid und 4,1 Masse-% Olein in die zweite Reaktionsstufe. Dort wurde es bei einer mittleren Verweilzeit von 3 Stunden bei 358 K in eine Qualitaet von 91,4 Masse-% Oleinchlorid und 2,4 Masse-% Oleinanhydrid ueberfuehrt. Nichtumgesetztes Olein lag nicht mehr vor. In einem weiteren Behälter wurde dieses Produkt anschliessend bei 338 K 3 Stunden mit HCl begast. Nach dieser Behandlung enthielt das Produkt 93,3 Masse-% Oleinchlorid neben 0,5 Masse-% Oleinanhydrid.

Bei der alkalischen Kondensation dieses Oleinchlorids unter bekannten Bedingungen mit Methyltaurinat entstand ein Acyltaurid mit einem Masseverhaeltnis der waschaktiven Substanzen Oleinmethyltaurid und oleinsaurem Natrium von 530 zu 1.

Beispiel 9:

In einem Rührbehälter wurden in einer Stunde 282 Masseteile Olein gemäß Beispiel 1 bei 323 K mit einem Ueberschuss von 15 % Thionylchlorid versetzt und bei gleicher Temperatur 2 Stunden nachgerührt. Im gleichen Behälter wurde das technische Produkt 3 Stunden bei 358 K nachgerührt. Die zweite Reaktionsstufe bewirkte eine Erhöhung der Oleinchloridausbeute gegenüber der ersten Reaktionsstufe von 90,5 Masse-% auf 94,1 Masse-%. Der Fettsäuregehalt aus nichtumgesetztem Olein plus potentielltem Oleinanteil aus dem Oleinanhydrid wurde von 3,2-Masse-% auf 1.0 Masse-% gesenkt.

Erfindungsanspruch

1. Verfahren zur Herstellung von Carbonsaeurechloriden mit verbesserter Reinheit durch Umsetzung von Carbonsaeuren mit geeigneten Chlorierungsmitteln, wie z.B. Phosphortrichlorid oder Thionylchlorid, dadurch gekennzeichnet, dass man in einer ersten Reaktionsstufe in bekannter Weise mit einem Ueberschuss am Chlorierungsmittel in Hoehe von 20 bis > 100 % und bei Temperaturen, die vorzugsweise im Bereich von 313 bis 353° K liegen, umsetzt, die das Nebenprodukt enthaltende Phase abtrennt und in einer zweiten Reaktionsstufe bei erhoelter Temperatur die weitgehende Umsetzung der nach der ersten Reaktionsstufe im Gemisch vorliegenden Carbonsaeureanhydride und nichtumgesetzten Carbonsaeuren zu Carbonsaeurechloriden bewirkt, wobei man die Reaktion im Temperaturbereich von 273 bis 523 K, vorzugsweise bei 323 bis 373 K, und in Gegenwart ausreichender Mengen an Chlorierungsmittel und ggf. Chlorwasserstoff, deren Konzentration gegebenenfalls nach der ersten Reaktionsstufe erhoelt werden kann, durchfuehrt.
2. Verfahren nach Punkt 1, gekennzeichnet dadurch, dass der Prozess unter Ruehren bzw. nach Mischen der Reaktionspartner in der ersten Stufe, ohne oder nur unter periodischem Ruehren durchgefuehrt wird.
3. Verfahren nach Punkt 1 und 2, gekennzeichnet dadurch, dass nach der Reaktion noch enthaltenes Chlorierungsmittel und/oder Chlorwasserstoff durch Normaldruck- bzw. Vakuumdestillation oder Ausblasen mit trockenem Inertgas entfernt werden.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

THIS PAGE BLANK (USPTO)